

DOCKET NO.: 267331US90PCT

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

IN RE APPLICATION OF: Kazutake OGYU, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HERewith

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP04/02373

INTERNATIONAL FILING DATE: February 27, 2004

FOR: CERAMIC HONEYCOMB STRUCTURAL BODY

**REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119**  
**AND THE INTERNATIONAL CONVENTION**

Commissioner for Patents  
Alexandria, Virginia 22313


Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

<b><u>COUNTRY</u></b>	<b><u>APPLICATION NO</u></b>	<b><u>DAY/MONTH/YEAR</u></b>
Japan	2003-053724	28 February 2003

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. PCT/JP04/02373. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,  
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Masayasu Mori  
Attorney of Record  
Registration No. 47,301  
Surinder Sachar  
Registration No. 34,423

Customer Number

**22850**

(703) 413-3000  
Fax No. (703) 413-2220  
(OSMMN 08/03)

Rec'd PCT/PTO 11 MAR 2005 #2

PCT/JP 2004/002373

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

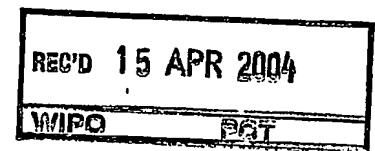
27.2.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 3 年   2 月 2 8 日  
Date of Application:

出 願 番 号            特 願 2 0 0 3 - 0 5 3 7 2 4  
Application Number:  
[ST. 10/C] :            [ J . P 2 0 0 3 - 0 5 3 7 2 4 ]



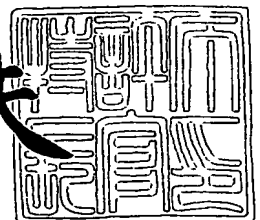
出 願 人            イビデン株式会社  
Applicant(s):

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年   4 月   1 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願  
【整理番号】 PH15037  
【提出日】 平成15年 2月28日  
【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿  
【国際特許分類】 F24J 3/00  
C09K 5/00

## 【発明者】

【住所又は居所】 岐阜県揖斐郡揖斐川町北方1-1 イビデン株式会社  
内

【氏名】 尾久 和丈

## 【特許出願人】

【識別番号】 000000158

【氏名又は名称】 イビデン株式会社

## 【代理人】

【識別番号】 100080687

## 【弁理士】

【氏名又は名称】 小川 順三

【電話番号】 03-3561-2211

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100077126

## 【弁理士】

【氏名又は名称】 中村 盛夫

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011947

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書  
【発明の名称】 セラミックハニカム構造体  
【特許請求の範囲】

【請求項1】 壁部を隔てて多数の貫通孔が長手方向に並設され、これらの貫通孔のどちらか一方の端部が充填材によって封止されてなる、柱状の多孔質セラミック部材の1つまたは複数個の組み合わせからなるセラミックハニカム構造体であって、前記隔壁は、最大高さ粗さ $R_z$ が $10\mu\text{m}$ 以上の表面粗さを有し、かつ、水銀圧入法により測定された平均細孔径が $5\sim 100\mu\text{m}$ で、その平均細孔径の $0.9\sim 1.1$ 倍の細孔径をもつ細孔の全細孔容積に対する割合を $A(\%)$ とし、前記隔壁の厚さを $B(\mu\text{m})$ としたとき、これらが、次式の関係；

$$A \geq 90 - B / 20$$

を満たすものであることを特徴とするセラミックハニカム構造体。

【請求項2】 壁部を隔てて多数の貫通孔が長手方向に並設され、これらの貫通孔のどちらか一方の端部が充填材によって充填されてなる、柱状の多孔質セラミック部材の1つまたは複数個の組み合わせからなるセラミックハニカム構造体であって、前記隔壁は、最大高さ粗さ $R_z$ が $10\mu\text{m}$ 以上の表面粗さを有し、かつ、水銀圧入法により測定された平均細孔径が $5\sim 100\mu\text{m}$ で、その平均細孔径の $0.9\sim 1.1$ 倍の細孔径を有する細孔の全細孔容積に対する割合を $A(\%)$ とし、前記隔壁の厚さを $B(\mu\text{m})$ としたとき、これらが、次式の関係；

$$A \geq 100 - B / 20$$

を満たすものであることを特徴とするセラミックハニカム構造体。

【請求項3】 前記表面粗さを示す最大高さ粗さ $R_z$ が $100\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする請求項1または2に記載のセラミックハニカム構造体。

【請求項4】 貫通孔を隔てる前記隔壁表面に、触媒のコーティング層を有することを特徴とする請求項1～3のいずれか1に記載のセラミックハニカム構造体。

【請求項5】 多孔質セラミック部材の複数個を組み合わせるに際し、該部材どうしの間にシール材層を介在させることを特徴とする請求項1～4のいずれか1に記載のセラミックハニカム構造体。

【請求項6】 車両の排気ガス浄化装置用フィルタとして使用されるものであることを特徴とする請求項1～5のいずれか1に記載のセラミックハニカム構造体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ディーゼルエンジン等の内燃機関から排出される排気ガス中のパティキュレート等を除去するためのフィルタ等として用いて有効なセラミックハニカム構造体に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

バス、トラック等の車両や建設機械等の内燃機関から排出される排気ガスは、その中に環境や人体に害を及ぼす含有されるパティキュレートを含むことが知られている。そこで、前記排気ガスからそうしたパティキュレートを除去する技術が求められている。例えば、そうした技術の1つとして、この排気ガス中のパティキュレートを、多孔質なセラミック部材中を通過させることにより捕集し、除去する排気ガス浄化用ハニカム構造体（フィルタ）がある。

【0003】

前記セラミックハニカム構造体の一例としては、図1に示すような、柱状の多孔質セラミック部材（ユニット）30をシール材層23を介して組み合わせてセラミックブロック25を構成し、このセラミックブロック25の周囲に排気ガス漏洩防止用シール材層24を形成してなるセラミックハニカムフィルタ20がある。このハニカムフィルタ20は、図2に示したように、柱状の多孔質セラミック部材（ユニット）30を構成単位として、これらの複数個を結束したものからなる。前記セラミック部材30は、長手方向に多数並設された貫通孔31どうしを隔てる隔壁33中に排ガスが通過する（ウオールフロー）ときに、この隔壁にて前記パティキュレートを捕集し除去することで、フィルタとして機能するようになっている。

【0004】

多孔質セラミック部材（ユニット）30に形成された貫通孔31は、図2（b）に示すように、排気ガスの入口側又は出口側の端部のいずれかが充填材32により目封じされ（好ましくは、市松模様状）、一の貫通孔31の一方の端部から流入した排気ガスは、この貫通孔31を隔てる隔壁33を通過した後、隣りの貫通孔31の他方の端部から流出するようになっている。

なお、外周に設けられたシール材層24は、上述したように、ハニカムフィルタ20を内燃機関の排気通路に設置した際、排気ガスがセラミックブロック25の外周部から漏れ出すのを防止する目的で設けられているものである。

#### 【0005】

このようなセラミックハニカムフィルタ20は、現在、耐熱性に優れ、再生処理が容易であることから、大型車両やディーゼルエンジン搭載車両等に使用されている。即ち、このようなハニカムフィルタ20が内燃機関の排気通路に設置されると、内燃機関より排出された排気ガス中のパーティキュレートは、このハニカムフィルタ20を通過する際に隔壁33により捕捉され（ウオールフロータイプ）、排気ガスが浄化が達成されるのである。

#### 【0006】

この種の従来の排気ガス浄化用ハニカムフィルタ20は、多孔質焼結体（隔壁）に生成した細孔の細孔径や細孔分布を調整したり、壁厚と細孔分布とを調整することで、捕集効率、圧力損失を調整するものが主流である。例えば、特許文献1では、平均細孔径が $1 \sim 15 \mu\text{m}$ の範囲であって、細孔径を常用対数で表した細孔径分布の標準偏差が0.20以下であるディーゼルパーティキュレートフィルタを開示している。また、特許文献2では、平均細孔径が $10 \sim 250 \mu\text{m}$ であり、細孔径を常用対数で表した細孔径の標準偏差が0.40以下である触媒担持フィルタを開示している。また、特許文献3には、過大な細孔が多い材料を用いてフィルタを作製するときは壁厚を厚くし、小さい細孔が多い材料を用いてフィルタを作製するときは壁厚を薄くしたセラミックス焼結体フィルタが開示されている。さらに、特許文献4には、セル壁の細孔率が55～75%、平均細孔径が $10 \sim 40 \mu\text{m}$ 、表面粗さ（最大高さRy）が $10 \mu\text{m}$ 以上である多孔質セラミックハニカムフィルタが開示されている。

## 【0007】

- 【特許文献1】 特許第3272746号公報  
【特許文献2】 国際公開WO02/26351号  
【特許文献3】 特開2001-269522号  
【特許文献4】 特開2003-1029号

## 【0008】

## 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、特許文献1、2に開示された排気ガスフィルタは、フィルタの細孔径分布があまりにも均一に揃っているために、表面粗さが小さくなる傾向があった。この場合、表面粗さが小さいと、触媒コーティング層の表面粗さもまた同様に小さなものとなるため、触媒コーティング層とパティキュレートとの反応サイトが少なくなって、酸素の供給が不十分となり、ひいては、触媒反応が不十分なものになるという問題があった。

## 【0009】

また、特許文献3に開示されたセラミックスフィルタは、細孔の分布量と壁厚が規定されており、薄い壁に対しては細かい細孔、厚い壁に対して大きい細孔を設けることが開示されているが、略同じような細孔を均一な密度で分散させているために、実質的には、表面粗さは、特許文献1、2と同様に、小さいものであった。

## 【0010】

さらに、特許文献4に開示されたハニカムフィルタは、細孔分布について検討していないために圧損等に対する対策が不十分である。

## 【0011】

本発明の目的は、従来技術が抱えている上述した課題を解決するためになされたものであり圧損と捕集効率に優れると共に、触媒反応性の高い有効なセラミックハニカム構造体の構造を提案することにある。

## 【0012】

## 【課題を解決するための手段】

本発明は、壁部を隔てて多数の貫通孔が長手方向に並設され、これらの貫通孔



のどちらか一方の端部が充填材によって封止されてなる、柱状の多孔質セラミック部材の1つまたは複数個の組み合わせからなるセラミックハニカム構造体についてこの構造体を形造っている、前記隔壁は、最大高さ粗さ $R_z$ が $10\mu\text{m}$ 以上の表面粗さを有し、かつ、水銀圧入法により細孔分布を測定したときの平均細孔径が $5\sim 100\mu\text{m}$ で、その平均細孔径の $0.9\sim 1.1$ 倍の細孔径をもつ細孔の全細孔容積に対する割合を $A(\%)$ とし、前記隔壁の厚さを $B(\mu\text{m})$ としたとき、これらが、次式の関係;

$$A \geq 90 - B/20, \text{ または } A \geq 100 - B/20$$

を満たすものであることを特徴とするセラミックハニカム構造体である。

#### 【0013】

なお、本発明において、多孔質セラミック部材の貫通孔を仕切っている壁部、即ち隔壁表面の粗さは、JIS B 0601-2001に規定された最大高さ粗さ $R_z$ で示し、この $R_z$ が $100\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、また、貫通孔を隔てる前記隔壁表面には、触媒のコーティング層が形成されていることが好ましく、多孔質セラミック部材の複数個の組み合わせに際し、該部材どうしの間にシール材層を介在させて複数個を結束したものが好ましく、車両の排気ガス浄化装置用フィルタとしてに使用されるものであることが好ましい。

#### 【0014】

##### 【発明の実施の形態】

本発明の特徴は、隔壁表面の粗さ(JIS B 0601-2001に規定された最大高さ粗さ $R_z$ で示す)、およびこの隔壁の厚みとの関連において細孔分布を特定することを要旨構成とするセラミックハニカム構造体を提案することにある。このような要旨構成を有するセラミックハニカム構造体は、たとえ隔壁表面に触媒をコーティングした後でも、パティキュレートの捕集効率の低下や圧力損失の増大を招くことがない。ただし、実際には、隔壁表面に触媒をコーティングすると、表面粗さが幾分小さくなり、触媒の反応性が悪くなる傾向が見られる。

そこで、本発明は、隔壁表面に触媒を担持した場合でも、触媒反応性の高いセラミックハニカム構造体を得るために、上記の要旨構成からなるセラミックハニカム構造体を提案するのである。

## 【0015】

なお、本発明は、従来技術のように、単に水銀圧入法によって測定した細孔分布のみを制御することにより、圧力損失や捕集効率を調整する技術ではない。その理由は、単に隔壁表面の細孔分布を調整するだけでは、上述したように触媒をコーティングした場合、その隔壁表面の凹凸が不足し、触媒の反応性を悪くするためである。

## 【0016】

一般に、隔壁の細孔分布の値は、たとえその数値が同一であったとしても、表面の大部分が浅い細孔によって構成されている場合（図3（b））と、極端に深い細孔と浅い細孔とが混在しているような場合（図3（a））とでは、壁部表面性状についてみると大きな差がある場合がある。例えば、隔壁表面の粗さにあまり差がないハニカム構造体の表面に、触媒コーティングを行なうと、（図3（b））の場合は、触媒コーティング層（以下、「触媒コート層」という）が細孔を埋めてしまい、該構造体表面が均一に覆われてしまうからである。

このことから、本発明にかかるハニカムフィルタ用セラミック部材としては、壁厚に応じた細孔分布を規定することに加え、触媒コーティング後の触媒の反応性を高めるために、表面粗さ $R_z$ をも規定することにしたのである。

## 【0017】

即ち、本発明の第1のものは、前記隔壁は、JIS B 0601-2001に規定された最大高さ粗さ $R_z$ 表示で $10\mu\text{m}$ 以上の表面粗さを有し、かつ、水銀圧入法により細孔分布を測定したときの平均細孔径が $5\sim 100\mu\text{m}$ で、その平均細孔径の $0.9\sim 1.1$ 倍の細孔径を有する細孔の全細孔容積に対する割合を $A(\%)$ とし、前記隔壁の厚さを $B(\mu\text{m})$ としたときに、これらが、次式の関係；

$$A \geq 90 - B / 20$$

を満たすことを特徴とするセラミックハニカム構造体である。

## 【0018】

上記式（ $A \geq 90 - B / 20$ ）は、隔壁の厚みと細孔分布とは一定の関係が成立することを表わしており、たとえば、壁厚が薄くなるほど、平均細孔径に対し

てバラツキの少ない比較的均一な細孔にすることが望ましく、逆に壁厚が厚くなると、平均細孔径に対してバラツキの大きい幾分不均一な細孔径分布にすることが許されることを意味している。このような基準で、隔壁を形成すると、パティキュレート捕集効率、圧力損失の各特性値を向上させることができる。

#### 【0019】

なぜなら、壁厚が薄い場合において、細孔分布を均一にすると、細孔径の違いによる排気ガス流の乱れが生じにくくなり、その結果として捕集効率が上がりかつ圧力損失も低減する。しかも、壁内の排気ガスの流量に差が生じることがなくなり、全体的に均一に捕集できる結果、パティキュレートが漏れにくくなって捕集効率が一層向上するのではないかと考えられる。

#### 【0020】

また、パティキュレート（すす）の捕集効率というのは、薄い壁厚の場合は壁表面のみにて捕集するが、厚い壁厚のものにおいては、壁の表面のみならず内部でも捕集することができるから、この場合、パティキュレートの壁表面に付着するパティキュレート層が薄くなることから、捕集効率が上がるだけでなく全体としての圧力損失も低減するようになる。

#### 【0021】

次に、触媒との反応効率に着目すると、隔壁内細孔径分布を均一にすると、細孔径の違いによる排気ガス流の乱れがなくなるために、排気ガス流量の差がなくなり、全体的に均一な反応が期待できる。また、この反応効率は、壁厚にも影響を受ける。即ち、薄い壁厚においては壁表面で反応させ、厚い壁厚においては壁内部にまで反応させることが可能になる。従って、壁厚は厚くなればなるほど、パティキュレートや排気ガスが触媒コート層上の触媒と接触する確率が高くなるため反応性が向上する。

この意味において、本発明では、壁厚と細孔径分布とを上記各式に基づいて決定するのである。

#### 【0022】

次に、本発明においては、最大高さ粗さで表示される隔壁の表面粗さ $R_z$ を $10\mu\text{m}$ 以上にすることが必要である。一般に、多孔体は、セラミック粒子自体に起

因する表面粗さ（凹凸）が存在するが、その表面粗さは小さいものであった。ところで、パティキュレートは、炭素微粒子、サルフェート等の硫黄系微粒子、高分子量炭化水素微粒子等によって構成されるものであって、粒子径が20～700nmであっても、凝集することで、0.1～10 $\mu$ m程度の2次粒子となっているものが多い。従って、隔壁表面の表面粗さが小さいと、前記パティキュレートが多孔体を構成するセラミック粒子の隙間を埋め、その表面の細孔中に細密充填するような状態で蓄積されるので、壁表面の凹凸が実質的になくなってしまい、圧損が高くなる。しかも、再生によって、圧損を下げようとしても、凝集して反応しにくくなったパティキュレートが、細孔中に細密充填されているため、その再生反応が起こりにくいという問題がある。

#### 【0023】

そこで、本発明では、再生時反応性を良くするために、表面粗さを大きくすることにした。このことにより、排気ガスに多種多様な流れが生じ、パティキュレートの細密充填が起こりにくくする。また、排気ガスに多種多様な流れを生じさせることで、ガスの流出入が激しくなって酸素等の供給が起こりやすくなり、触媒反応の起こりやすいセラミック部材を作製することができる。なお、表面粗さを大きくしたセラミック部材にすることは、触媒コート後の壁部の表面粗さを大きくすることにある。

#### 【0024】

本発明の第2のものは、前記壁部は、JIS B 0601-2001に規定された最大高さ粗さRzが10 $\mu$ m以上の表面粗さを有し、かつ、水銀圧入法により細孔分布を測定したときの、平均細孔径が5～100 $\mu$ mで、その平均細孔径の0.9～1.1倍の細孔径を有する細孔の全細孔容積に対する割合をA（％）とし、前記壁厚の厚さをB（ $\mu$ m）としたとき、これらが次式の関係；

$$A \geq 100 - B / 20$$

を満たすことを特徴とするセラミックハニカム構造体である。

#### 【0025】

上記式（ $A \geq 100 - B / 20$ ）は、第1の発明と同様に、捕集効率と圧力損失に与える隔壁の厚みと細孔分布との関係を示しており、たとえば、壁厚が薄く

なるほど、平均細孔径に対して、バラツキの少ない比較的均一な細孔分布にすることが望ましく、逆に壁厚が厚くなると、平均細孔径に対して、バラツキの大きい幾分不均一な細孔分布にすることが好ましいことを意味している。ただし、この場合、第1の発明の式とは異なり、壁厚に対する細孔分布があまりにも均一すぎると問題が起こることから、これを補正した点に特徴がある。

#### 【0026】

即ち、細孔分布があまりにも、均一でなりすぎると、エンジンによって同時期に発生した同じ形状をもったパティキュレートが、瞬間的に多孔質を構成する粒子の細孔を均一に埋めるように蓄積されてしまい、圧力損失が急に高くなると共に、壁表面の凹凸がなくなるように蓄積されて圧損が高くなるからである。

そこで、本発明では、細孔の細孔径にある程度のバラツキを与えることで、部分的な細孔の不均一さを意識的に作ることが有効であるとの知見に基づき、上記式に想到したのである。このように、細孔の細孔径にある程度のバラツキもたせた時、捕集効率、圧力損失を一層向上させることができると共に、触媒コート層を形成したときの反応性についても向上させることができる。

#### 【0027】

次に、本発明では、上記表面粗さ $R_z$ を $100\mu\text{m}$ 以下にすることが好ましい場合がある。

上述した第1発明、第2発明においては、壁厚が薄くなるほど、平均細孔径に対して均一な細孔径とし、逆に壁厚が厚くなると、平均細孔径に対して幾分不均一な細孔分布をもつセラミックハニカム構造体を提供した。

しかし、この場合のように、表面粗さ $R_z$ が $100\mu\text{m}$ より高いものだと、穴径が細くて非常に深い凹部（谷）、穴径が細くて非常に高い凸部（山）の、少なくとも2種の細孔が存在するものになる。その結果、凹部（谷）の奥深くにまで、パティキュレートが薄く均一に蓄積されれば、第1発明に述べたことと同様に、反応性が向上すると考えられる。しかし、パティキュレートの粒子径が通常 $20\sim 700\text{nm}$ であっても、凝集することで、 $0.1\sim 10\mu\text{m}$ 程度の2次粒子となっているが多く、このことから薄く均一に捕集すること自体が困難となり、凹部（谷）の途中で、パティキュレートの凝集した2次粒子が、凹部を塞ぐように充

填吸着され、表面粗さを小さくすることとなる。そのため、本発明において表面粗さを規定した意義が失われ、従来技術のように、圧力損失が高くなり、反応性が悪いものになってしまう。

#### 【0028】

また、本発明においては、隔壁表面に触媒コート層を形成する場合、細孔分布が小さく抑えられている上に、前記表面粗さRzが100  $\mu$ mより高いものになると、フィルタの細孔の奥深くまで、触媒コート層が形成されず、コーティングが生じてしまい、結果的に、反応性の悪いものになってしまう。

#### 【0029】

なお、本発明のセラミックハニカム構造体は、多数の貫通孔が壁部を隔てて長手方向に並設された柱状の多孔質セラミック部材を含んで構成されているが、上記多孔質セラミック部材は、多数の貫通孔が隔壁を隔てて長手方向に並設された柱状の多孔質セラミック部材がシール材層を介して複数個結束されることにより構成されていてもよく（以下、「集合体型ハニカムフィルタ」という）、全体が一体として焼結形成されたセラミック部材から構成されていてもよい（以下、「一体型ハニカムフィルタ」という）。

#### 【0030】

上記集合体型ハニカムフィルタの場合、壁部は、多孔質セラミック部材の貫通孔を隔てる隔壁と、多孔質セラミック部材の外壁及び多孔質セラミック部材間の接着材層として機能しているシール材層とから構成されており、上記一体型ハニカムフィルタの場合、一種類の隔壁のみにより構成されている。

#### 【0031】

図1は、本発明のハニカム構造体の一例である集合体型ハニカムフィルタの具体例を模式的に示した斜視図であり、図2（a）は、図1に示したハニカムフィルタを構成する多孔質セラミック部材の一例を模式的に示した斜視図であり、（b）は、（a）に示した多孔質セラミック部材のA-A線断面図である。

#### 【0032】

図1及び図2に示したように、本発明のセラミックハニカム構造体（以下、「ハニカムフィルタ」という）20は、多孔質セラミック部材30がシール材層2

4 を介して複数個結束されてセラミックブロック 2 5 を構成し、このセラミックブロック 2 5 の周囲には、排気ガスの漏れを防止するためのシール材層 2 3 が形成されているものである。

#### 【0 0 3 3】

また、この多孔質セラミック部材 3 0 は、その長手方向に多数の貫通孔 3 1 が並設されており、排気ガス入口側又は出口側の端部のいずれかが充填材 3 2 により封止され、これらの貫通孔 3 1 同士を隔てる隔壁 3 3 がフィルタとして機能するようになっている。

#### 【0 0 3 4】

このような構成のハニカムフィルタ 2 0 がディーゼルエンジン等の内燃機関の排気通路にフィルタとして設置され、内燃機関より排出された排気ガスのパーティキュレートは、このハニカムフィルタ 2 0 を通過する際に隔壁 2 3 により補足され、排気ガスが浄化される。

#### 【0 0 3 5】

図 1 に示したハニカムフィルタ 2 0 では、形状は円柱状であるが、本発明のハニカム構造体は、円柱状に限定されることはなく、例えば、楕円柱状や角柱状等任意の形状のものであってもよい。

#### 【0 0 3 6】

本発明のハニカム構造体において、多孔質セラミック部材の材料としては特に限定されず、例えば、窒化アルミニウム、窒化ケイ素、窒化ホウ素、窒化チタン等の窒化物セラミック、炭化珪素、炭化ジルコニウム、炭化チタン、炭化タンタル、炭化タングステン等の炭化物セラミック、アルミナ、ジルコニア、コージュライト、ムライト等の酸化物セラミック等を挙げることができるが、これらのなかでは、耐熱性が大きく、機械的特性に優れ、かつ、熱伝導率も大きい炭化珪素が望ましい。なお、上述したセラミックに金属珪素を配合した珪素含有セラミック、珪素や珪酸塩化合物で結合されたセラミックも用いることができる。

#### 【0 0 3 7】

また、多孔質セラミック部材の細孔率は特に限定されないが、2 0 ～8 0 %程度であることが望ましい。細孔率が2 0 %未満であると、本発明のハニカムフィ

ルタがすぐに目詰まりを起こすことがあり、一方、細孔率が80%を超えると、多孔質セラミック部材の強度が低下して容易に破壊されることがある。

なお、上記細孔率は、例えば、水銀圧入法、アルキメデス法及び走査型電子顕微鏡 (SEM) による測定等、従来公知の方法により測定することができる。

#### 【0038】

また、上記多孔質セラミック部材の平均細孔径は5～100  $\mu\text{m}$ であることが望ましい。平均細孔径が5  $\mu\text{m}$ 未満であると、パーティキュレートが容易に目詰まりを起こすことがある。一方、平均細孔径が100  $\mu\text{m}$ を超えると、パーティキュレートが細孔を通り抜けてしまい、該パーティキュレートを捕集することができず、フィルタとして機能することができないことがある。

#### 【0039】

このような多孔質セラミック部材を製造する際に使用するセラミックの粒径としては特に限定されないが、後の焼成工程で収縮が少ないものが望ましく、例えば、0.3～50  $\mu\text{m}$ 程度の平均粒径を有する粉末100重量部と、0.1～1.0  $\mu\text{m}$ 程度の平均粒径を有する粉末5～65重量部とを組み合わせたものが望ましい。上記粒径のセラミック粉末を上記配合で混合することで、多孔質セラミック部材を製造することができるからである。

#### 【0040】

上記充填材は、多孔質セラミックからなるものであることが望ましい。本発明のフィルタにおいて、上記充填材が封止された多孔質セラミック部材は、多孔質セラミックからなるものであるため、上記充填材を上記多孔質セラミック部材と同じ多孔質セラミックとすることで、両者の接着強度を高くすることができるとともに、封止材の細孔率を上述した多孔質セラミック部材と同様に調整することで、上記多孔質セラミック部材の熱膨張率と充填材の熱膨張率との整合を図ることができ、製造時や使用時の熱応力によって充填材と隔壁との間に隙間が生じたり、充填材や充填材に接触する部分の隔壁にクラックが発生したりすることを防止することができる。

#### 【0041】

上記充填材が多孔質セラミックからなる場合、その材料としては特に限定され



ず、例えば、上述した多孔質セラミック部材を構成するセラミック材料と同様の材料を挙げることができる。

#### 【0042】

本発明のフィルタにおいて、シール材層23、24は、多孔質セラミック部材20間、及び、セラミックブロック25の外周に形成されている。そして、多孔質セラミック部材30間に形成されたシール材層23は、複数の多孔質セラミック部材30同士を結束する接着剤として機能し、一方、セラミックブロック15の外周に形成されたシール材層24は、本発明のフィルタ20を内燃機関の排気通路に設置した際、セラミックブロック25の外周から排気ガスが漏れ出すことを防止するための封止材として機能する。

#### 【0043】

上記シール材層を構成する材料としては特に限定されず、例えば、無機バインダー、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子からなるもの等を挙げることができる。

なお、上述した通り、本発明のフィルタにおいて、シール材層は、多孔質セラミック部材間、及び、セラミックブロックの外周に形成されているが、これらのシール材層は、同じ材料からなるものであってもよく、異なる材料からなるものであってもよい。さらに、上記シール材層が同じ材料からなるものである場合、その材料の配合比は同じものであってもよく、異なるものであってもよい。

#### 【0044】

上記無機バインダーとしては、例えば、シリカゾル、アルミナゾル等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。上記無機バインダーのなかでは、シリカゾルが望ましい。

#### 【0045】

上記有機バインダーとしては、例えば、ポリビニルアルコール、メチルセルロース、エチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。上記有機バインダーのなかでは、カルボキシメチルセルロースが望ましい。

#### 【0046】

上記無機繊維としては、例えば、シリカーアルミナ、ムライト、アルミナ、シリカ等のセラミックファイバー等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。上記無機繊維のなかでは、シリカーアルミナファイバーが望ましい。

#### 【0047】

上記無機粒子としては、例えば、炭化物、窒化物等を挙げることができ、具体的には、炭化珪素、窒化珪素、窒化硼素等からなる無機粉末又はウイスキー等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。上記無機粒子のなかでは、熱伝導性に優れる炭化珪素が望ましい。

#### 【0048】

シール材層23は、緻密体からなるものであってもよく、その内部への排気ガスの流入が可能なように、多孔質体であってもよいが、シール材層24は、緻密体からなるものであることが望ましい。シール材層24は、本発明のフィルタ20を内燃機関の排気通路に設置した際、セラミックブロック25の外周から排気ガスが漏れ出すことを防止する目的で形成されているからである。

#### 【0049】

図4(a)は、本発明のハニカムフィルタの一例である一体型フィルタの具体例を模式的に示した斜視図であり、(b)は、そのB-B線断面図である。

#### 【0050】

図4(a)に示したように、ハニカムフィルタ10は、多数の貫通孔11が壁部13を隔てて長手方向に並設された柱状の多孔質セラミックブロック15を含んで構成されている。

また、この柱状の多孔質セラミックブロック15は、その長手方向に多数の貫通孔11が並設されており、排気ガス入口側又は出口側の端部のいずれかが充填材12により封止され、これらの貫通孔11同士を隔てる隔壁13がフィルタとして機能するようになっている。

#### 【0051】

このフィルタ10では、多孔質セラミックブロック15が焼結により製造された一体構造のものである他は、前記フィルタ20と同様に構成されており、流入

した排気ガスは、貫通孔同士を隔てる壁部 13 を通過した後、流出するようになっている。

#### 【0052】

本発明のハニカムフィルタ 10 において、柱状の多孔質セラミックブロック 15 の細孔率は 20～80% であることが望ましい。多孔質セラミックブロック 15 の細孔率が 20% 未満であると、フィルタ 10 がすぐに目詰まりを起こすことがあり、一方、多孔質セラミックブロック 15 の細孔率が 80% を超えると、フィルタ 10 の強度が低下して容易に破壊されることがある。

#### 【0053】

多孔質セラミックブロック 15 の大きさとしては特に限定されず、使用する内燃機関の排気通路の大きさ等を考慮して適宜決定される。また、その形状としては、柱状であれば特に限定されず、例えば、円柱状、楕円柱状、角柱状等任意の形状を挙げることができるが、通常、図 3 に示したように、円柱状のものがよく用いられる。

#### 【0054】

多孔質セラミックブロック 15 を構成する多孔質セラミックとしては特に限定されず、例えば、コージェライト、アルミナ、シリカ、ムライト等の酸化物セラミック、炭化ケイ素、炭化ジルコニウム、炭化チタン、炭化タンタル、炭化タングステン等の炭化物セラミック、及び、窒化アルミニウム、窒化ケイ素、窒化ホウ素、窒化チタン等の窒化物セラミックを挙げることができるが、通常、コージェライト等の酸化物セラミックが使用される。安価に製造することができるとともに、比較的熱膨張係数が小さく、使用中に酸化されることがないからである。

#### 【0055】

多孔質セラミックブロック 15 の平均細孔径は 5～100  $\mu\text{m}$  程度であることが望ましい。平均細孔径が 5  $\mu\text{m}$  未満であると、パーティキュレートが容易に目詰まりを起こすことがある。一方、平均細孔径が 100  $\mu\text{m}$  を超えると、パーティキュレートが細孔を通り抜けてしまい、該パーティキュレートを捕集することができず、フィルタとして機能することができないことがある。

#### 【0056】

このようなハニカムフィルタ 1 0 における充填材 1 2 は、多孔質セラミックからなるものであることが望ましい。充填材 1 2 が充填された多孔質セラミックブロック 1 5 は、多孔質セラミックからなるものであるため、充填材 1 2 を多孔質セラミックブロック 1 5 と同じ多孔質セラミックとすることで、両者の接着強度を高くすることができるとともに、充填材 1 2 の細孔率が上述した条件を満たすように調整することで、多孔質セラミックブロック 1 5 の熱膨張率と充填材 1 2 の熱膨張率との整合を図ることができ、製造時や使用時の熱応力によって充填材 1 2 と壁部 1 3 との間に隙間が生じたり、充填材 1 2 や充填材 1 2 に接触する部分の壁部 1 3 にクラックが発生したりすることを防止することができる。

#### 【0057】

充填材 1 2 が多孔質セラミックからなる場合、その材料としては特に限定されず、例えば、上述した多孔質セラミックブロック 1 5 を構成するセラミック材料と同様の材料を挙げることができる。

#### 【0058】

図 1 及び図 4 に示したような構成からなる本発明のハニカムフィルタにおいて、貫通孔の長手方向に垂直な断面（以下、単に断面という）の形状は、多角形であることが望ましい。

#### 【0059】

本発明では、断面を 4 角形、5 角形、台形、8 角形等の多角形としてもよく、また、種々の多角形を混在させてもよい。

#### 【0060】

次に、本発明のフィルタの製造方法の一例について説明する。

本発明のハニカムフィルタの構造が図 3 に示したような、その全体が一の焼結体から構成された一体型フィルタである場合、まず、上述したようなセラミックを主成分とする原料ペーストを用いて押出成形を行い、図 4 に示したフィルタ 1 0 と略同形状のセラミック成形体を作製する。

上記押出成形では、押出成形機の先端部分に設けられ、多数の細孔が形成された金属製のダイスから上記原料ペーストを連続的に押し出し、所定の長さに切断することで、セラミック成形体を作製できるが、本発明のハニカム構造体を製造

するには、上記ダイスに形成された細孔、スリット等の壁面に研磨処理等を行なうことによって、面相度を $100\mu\text{m}$ 以下に調整する。

上記ダイスの細孔、スリットの壁面は、押出成形において原料ペーストが直接接触する部分であり、その壁面の面粗度が高いものであると、作製するセラミック成形体の貫通孔となる開口の内壁の面粗度が大きなものとなってしまう、後工程を経て製造する本発明のハニカムフィルタの貫通孔の内壁の面粗度が調整することが難しくなる。

また、本発明では、造孔作用をもつ造孔材のアスペクト比のような形状を調整することによっても調整している。

なお、上記原料ペーストの粘度、各材料の粒径、配合比等を調整することによっても可能である。

#### 【0061】

上記原料ペーストは、製造後の多孔質セラミックブロックの細孔率が $20\sim 80\text{mass}\%$ となるものであれば特に限定されず、例えば、上述したようなセラミックからなる粉末にバインダー及び分散媒液を加えたものを挙げることができる。

#### 【0062】

上記バインダーとしては特に限定されず、例えば、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ポリエチレングリコール、フェノール樹脂、エポキシ樹脂等を挙げることができる。

上記バインダーの配合量は、通常、セラミック粉末 $100$ 重量部に対して、 $1\sim 10$ 重量部程度が望ましい。

#### 【0063】

上記分散媒液としては特に限定されず、例えば、ベンゼン等の有機溶媒；メタノール等のアルコール、水等を挙げることができる。

上記分散媒液は、原料ペーストの粘度が一定範囲内となるように、適量配合される。

#### 【0064】

これらセラミック粉末、バインダー及び分散媒液は、アトライター等で混合し、ニーダー等で十分に混練した後、押出成形して上記セラミック成形体を作製す

る。

#### 【0065】

また、上記原料ペーストには、必要に応じて成形助剤を添加してもよい。

上記成形助剤としては特に限定されず、例えば、エチレングリコール、デキストリン、脂肪酸石鹸、ポリアルコール等を挙げることができる。

#### 【0066】

さらに、上記原料ペーストには、必要に応じて酸化物系セラミックを成分とする微小中空球体であるバルーンや、球状アクリル粒子、グラファイト等の造孔剤を添加してもよい。

上記バルーンとしては特に限定されず、例えば、アルミナバルーン、ガラスマイクロバルーン、シラスバルーン、フライアッシュバルーン（FAバルーン）及びムライトバルーン等を挙げることができる。これらのなかでは、フライアッシュバルーンが望ましい。

#### 【0067】

そして、上記セラミック成形体を、マイクロ波乾燥機、熱風乾燥機、誘電乾燥機、減圧乾燥機、真空乾燥機及び凍結乾燥機等を用いて乾燥させた後、所定の貫通孔に封止材となる封止材ペーストを充填し、上記貫通孔に目封じする封口処理を施す。

#### 【0068】

上記充填材ペーストとしては、後工程を経て製造される封止材の細孔率が20～80%となるものであれば特に限定されず、例えば、上記原料ペーストと同様のものを用いることができるが、上記原料ペーストで用いたセラミック粉末に潤滑剤、溶剤、分散剤及びバインダーを添加したものであることが望ましい。上記封口処理の途中で封止材ペースト中のセラミック粒子が沈降することを防止することができるからである。

#### 【0069】

次に、上記充填材ペーストが充填されたセラミック乾燥体に、所定の条件で脱脂、焼成を行うことにより、多孔質セラミックからなり、その全体が一の焼結体から構成されたフィルタを製造することができる。ここで、本発明では、表面粗

さを粗くするために、上記セラミック乾燥体の脱脂及び焼成の条件を変更する。即ち、そのためには、上記の脱脂焼成時において、セラミック部材から、造孔材、成形助剤等が揮発し、細孔を生じさせることもあるが、その際貫通孔内に、十分な、雰囲気ガスを通過させることが必要である。

#### 【0070】

また、本発明のハニカムフィルタの構造が、図1に示したような、多孔質セラミック部材がシール材層を介して複数個結束されて構成された集合体型フィルタである場合、まず、上述したセラミックを主成分とする原料ペーストを用いて押出成形を行い、図2に示した多孔質セラミック部材30のような形状の生成形体を作製する。

#### 【0071】

なお、上記原料ペーストは、上述した集合体型ハニカムフィルタにおいて説明した原料ペーストと同様のものを挙げることができる。

#### 【0072】

次に、上記生成形体を、マイクロ波乾燥機等を用いて乾燥させて乾燥体とした後、該乾燥体の所定の貫通孔に封止材となる封止材ペーストを充填し、上記貫通孔を目封じする封口処理を施す。

なお、上記封止材ペーストは、上述した一体型フィルタにおいて説明した封止材ペーストと同様のものを挙げることができ、上記封口処理は、封止材ペーストを充填する対象が異なるほかは、上述した一体型フィルタの場合と同様の方法を挙げることができる。

#### 【0073】

次に、上記封口処理を経た乾燥体に所定の条件で脱脂、焼成を行うことにより、複数の貫通孔が隔壁を隔てて長手方向に並設された多孔質セラミック部材を製造することができる。このときも、上述した一体型フィルタの場合と同様の方法を挙げるすることができる。

#### 【0074】

次に、シール材層24となるシール材ペーストを均一な厚さで塗布して、順次他の多孔質セラミック部材30を積層する工程を繰り返し、所定の大きさの角柱

状の多孔質セラミック部材 30 の積層体を作製する。

なお、上記シール材ペーストを構成する材料としては、上述した本発明のフィルタにおいて説明した通りであるのでここではその説明を省略する。

#### 【0075】

次に、この多孔質セラミック部材 30 の積層体を加熱してシール材ペースト層を乾燥、固化させてシール材層 24 とし、その後、例えば、ダイヤモンドカッター等を用いて、その外周部を図 1 に示したような形状に切削することで、セラミックブロック 25 を作製する。

#### 【0076】

そして、セラミックブロック 25 の外周に上記シール材ペーストを用いてシール材層 23 を形成することで、多孔質セラミック部材がシール材層を介して複数個結束されて構成されたフィルタを製造することができる。

#### 【0077】

このようにして製造したフィルタはいずれも柱状であり、その構造は、図 1 や図 4 に示した通りである。

そして、フィルタ 60 の壁部（隔壁）に大量のパティキュレートが堆積し、圧力損失が高くなると、フィルタ 60 の再生処理が行われる。

上記再生処理では、加熱手段 610 を用いて加熱されたガスをフィルタ 60 の貫通孔の内部へ流入させることで、フィルタ 60 を加熱し、壁部（隔壁）に堆積したパティキュレートを燃焼除去させるのである。

また、ポストインジェクション方式を用いてパティキュレートを燃焼除去してもよい。

#### 【0078】

また、本発明のハニカム構造体には、排気ガス中の CO、HC 及び NO<sub>x</sub> 等を浄化することができる触媒が担持されていてもよい。

このような触媒が担持されていることで、本発明のハニカムフィルタは、排気ガス中のパティキュレートを捕集するフィルタとして機能するとともに、排気ガスに含有される上記 CO、HC 及び NO<sub>x</sub> 等を浄化するための触媒担持体として機能する。



上記触媒としては、排気ガス中のCO、HC及びNO<sub>x</sub>等を浄化することが出来る触媒であれば特に限定されず、例えば、白金、パラジウム、ロジウム等の貴金属を挙げることができる。また、貴金属に加えて、アルカリ金属（元素周期表1族）、アルカリ土類金属（元素周期表2族）希土類元素（元素周期表3族）、遷移金属元素が加わることがある。

#### 【0079】

本発明の触媒コート層は、セラミック部材の隔壁粒子上に形成された層であって、少なくとも、上記触媒が要求されるが、高比表面積をもつアルミナ、ジルコニア、チタニア、シリカからなるサポート材層に上記触媒が担持されている方が望ましい。

#### 【0080】

以下の説明においては、触媒コート層として、触媒を白金、サポート材層としてアルミナを用いた例を説明する。

まず、溶液作成方法としては、サポート材の粉末を粉碎機等で微細に粉碎し、サポート材の粉末を溶剤と攪拌し混合することで、溶液を製作する。具体的には、 $\gamma$ -アルミナの酸化物の粉末をゾルゲル法等によって製作する。このとき、触媒のコート層として用いるために出来るだけ高い比表面積を有したものであることがよく、望ましくは $250\text{ m}^2/\text{g}$ 以上の高い比表面積値を有するものを選択することが望ましい。比表面積が高いことから $\gamma$ -アルミナを選択することが望ましい。

#### 【0081】

これらの粉末に、水和アルミナ、アルミナゾル、シリカゾルのような、無機質のバインダを加えたり、純水、水、アルコール、ジオール、多価アルコール、エチレングリコール、エチレンオキシド、トリエタノールアミン、キシレンなどの溶媒を、5～20wt%程度加え、粉碎して攪拌する。

実際にサポート材として用いられる酸化物が500nm以下程度になるまで粉碎を行なう。細かく粉碎することで隔壁の表層にコートされた従来技術のウオッシュコートによる触媒コート層とは異なり、セラミック部材の隔壁粒子上に均一にアルミナ膜を形成することができる。

**【0082】**

上記金属酸化物の粉末入り溶液を、含浸する。これを、110～200℃で2時間程度の加熱を行って乾燥させた後、本焼成を行なう。好ましい本焼成の温度は500～1000℃で、1～20時間の処理を行う。この温度が500℃より低いと結晶化が進まないからであり、一方、1000℃よりも高いと、結晶が進行しすぎて、表面積が低下する傾向にあるからである。また、これらの工程前後の重量を測定することで、担持量を計算することができる。

**【0083】**

なお、アルミナ含浸を行う前に、セラミック部材の隔壁粒子上の各々の表面に、濡れ性を向上させる処理を行なうことが望ましい。例えば、HF溶液によって、炭化珪素粒子表面を改質させると、触媒溶液との濡れ性が向上されることになり、触媒コート層を形成後の表面粗さがフィルタ高いものであることになる。

次に、白金の担持を行なう。白金が入った溶液をセラミック部材の給水分のみ、ピペットで滴下したのち、110℃で2時間乾燥し、窒素雰囲気、500～1000℃で乾燥して、金属化をはかった。

**【0084】**

本発明のフィルタの用途は特に限定されないが、車両の排気ガス浄化装置に用いることが望ましい。

**【0085】****【実施例】**

以下に実施例を掲げて本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

**【0086】****(実施例1)**

この実施例は、細孔径、細孔分布、表面粗さを変化させたセラミック部材を作製し、その表面に白金含有アルミナコート層を形成した時の作用効果を確認するために行なったものである。

実施例、比較例のセラミック部材の製法を、まとめて、表1に示す。

なお、セラミック部材の製法は次の形式による。まず、原料として、比較的大

きい平均粒子径の炭化珪素粉末（これを、「粉体A」とする）と、比較的小さい平均粒子径の炭化珪素粉末（これを、「粉体B」とする）とを混合した。そして、目的の細孔径分布のセラミック部材を作製するために、様々な形状のアクリル粒子（密度  $1.1 \text{ g/cm}^3$ ）を炭化珪素原料粉末との体積割合で混合した。そして、炭化珪素原料粉末との重量割合で成形助剤としてのメチルセルロースを入れて混合した。最後に、有機溶媒及び水からなる分散溶媒を全ての原料を混練したのち、金型のスリットの表面粗さを変えた金型をもちいて押出し成形し、多数の貫通孔を有するハニカム成形体とし、前記貫通孔のいずれか一方の端部を市松模様封止した成型体を得た。ついで、その成型体を  $150^\circ\text{C}$  で乾燥し、 $500^\circ\text{C}$  で脱脂した後、不活性雰囲気下で、表1に示した流量を前記貫通孔に流しながら、焼成することによって、大きさが、 $34.3 \text{ mm} \times 34.3 \text{ mm} \times 150 \text{ mm}$ 、 $300 \text{ セル/in}^2$  の炭化珪素質焼結体からなるセラミック部材のサンプルを得た。

これらのサンプルについて、それらの平均細孔径（ $0.2 \sim 500 \mu\text{m}$  まで）を水銀圧入法によって測定した。そして、細孔径の平均値と、細孔径分布、表面粗さ  $R_z$  の値を表1に示した。

これらのサンプルのうち、表面粗さ  $R_z$  を  $10 \mu\text{m}$  とし、壁厚を  $200 \mu\text{m}$ 、 $300 \mu\text{m}$ 、 $400 \mu\text{m}$ 、細孔分布を  $65\%$ 、 $70\%$ 、 $75\%$ 、 $80\%$ 、 $85\%$ 、 $90\%$ 、 $95\%$  のサンプルを用いて、 $5 \text{ m/s}$  のガスを流し、その差圧を測定した。その結果を図5に示した。

図5に示す結果から、細孔分布が密でありすぎると、初期圧力損失が高くなる。また、粗である場合も同様に初期圧力損失が高くなる。壁の厚さが、 $200 \mu\text{m}$  の場合には、細孔分布が  $80 \sim 90\%$  のときが最も圧損が小さく、同様に、壁厚が  $300 \mu\text{m}$  の場合には、細孔分布が  $75 \sim 85\%$ 、壁厚が  $400 \mu\text{m}$  の場合には、細孔分布が  $70 \sim 80\%$  のとき最も圧損が低いものとなった。

#### 【0087】

次に、上記サンプルについて、 $0.01 \sim 0.05 \text{ g/L}$  の模擬ガスを、3分間流入させ、その前後の捕集量を測定することにより、捕集効率を測定した。その結果を図6に示す。

その結果から、壁厚が厚いと、細孔分布が粗であってもある程度の捕集量が、確保されることがわかった。

#### 【0088】

次に、表面粗さ $R_z$ に差をつけたサンプルをもちいて、パティキュレート（すす）の捕集時の圧損を測定した。6 g/Lの捕集後のデータを図7に示した。また、800℃に加熱して再生実験を行なった。その結果を図8に示した。

表面粗さ $R_z$ が小さすぎたり、大きすぎたりすると、圧損が高く再生率が低くなった。切断して観察したところ、表面粗さが細かいとパティキュレートの凝集がみられ、一方に、表面粗さが大きすぎても、パティキュレートが残っていた。

#### 【0089】

次に、0.1%のHF溶液に、1分間浸漬した後、60 g/Lのアルミナコート、2 g/LのPtの担持を行なった上で、触媒コート層の上にも表面粗さ $R_z$ に差を設けたサンプルをもちいて初期の圧損を測定した。その結果を図9に示すが、表面粗さが高くて、また低くても圧損が高い傾向がみられた。次に、6 g/L捕集後の再生実験を行なった（図10）。その結果、表面粗さが大きいものと低いものとは、再生率が低く、結果的に燃え残りが生じていた。なお、表面改質を行なわないものは、表面粗さ $R_z$ が10  $\mu$ 以下であった。

実施例、比較例から、セラミック部材に触媒コート層を60 g/Lを担持して、時間ススを捕集した場合、表面粗さ $R_z$ が10  $\mu$ m以上であると、10 g/Lのすす（煤）を捕集した場合に再生効率が低いことがわかった。

また、表面粗さ $R_z$ が100  $\mu$ m以上だと、10 g/Lのススを捕集した場合に再生効率が低くなることもわかった。

#### 【0090】

##### 【表1】

	粉体A		粉体B		粉体C		成形助剤	分散媒液	焼成温度	焼成時間	金型粗さ	流入量	気孔径		気孔径分	表面粗さ
	粒径	%	粒径	%	75μm外比	%							μm	%		
サンプルA1	10μm	70	0.3μm	30	10μm	1	3	10	18	2200	6	5	5	10	95	8
サンプルA2	10μm	70	0.3μm	30	10μm	1.5	3	10	18	2200	6	5	5	10	90	8
サンプルA3	10μm	70	0.3μm	30	10μm	2	3	10	18	2200	6	5	5	10	85	8
サンプルA4	10μm	70	0.3μm	30	10μm	2.5	3	10	18	2200	6	5	5	10	80	8
サンプルA5	10μm	70	0.3μm	30	10μm	3	3	10	18	2200	6	5	5	10	75	8
サンプルA6	10μm	70	0.3μm	30	10μm	3.5	3	10	18	2200	6	5	5	10	70	8
サンプルA7	10μm	70	0.3μm	30	10μm	4	3	10	18	2200	6	5	5	10	65	8
サンプルB1	10μm	70	0.3μm	30	10μm	1	3	10	18	2200	6	10	7	10	95	10
サンプルB2	10μm	70	0.3μm	30	10μm	1.5	3	10	18	2200	6	10	7	10	90	10
サンプルB3	10μm	70	0.3μm	30	10μm	2	3	10	18	2200	6	10	7	10	85	10
サンプルB4	10μm	70	0.3μm	30	10μm	2.5	3	10	18	2200	6	10	7	10	80	10
サンプルB5	10μm	70	0.3μm	30	10μm	3	3	10	18	2200	6	10	7	10	75	10
サンプルB6	10μm	70	0.3μm	30	10μm	3.5	3	10	18	2200	6	10	7	10	70	10
サンプルB7	10μm	70	0.3μm	30	10μm	4	3	10	18	2200	6	10	7	10	65	10
サンプルC1	10μm	70	0.3μm	30	10μm	1	3	10	18	2200	6	50	9	10	95	50
サンプルC2	10μm	70	0.3μm	30	10μm	1.5	3	10	18	2200	6	50	9	10	90	50
サンプルC3	10μm	70	0.3μm	30	10μm	2	3	10	18	2200	6	50	9	10	85	50
サンプルC4	10μm	70	0.3μm	30	10μm	2.5	3	10	18	2200	6	50	9	10	80	50
サンプルC5	10μm	70	0.3μm	30	10μm	3	3	10	18	2200	6	50	9	10	75	50
サンプルC6	10μm	70	0.3μm	30	10μm	3.5	3	10	18	2200	6	50	9	10	70	50
サンプルC7	10μm	70	0.3μm	30	10μm	4	3	10	18	2200	6	50	9	10	65	50
サンプルD1	10μm	70	0.3μm	30	10μm	1	3	10	18	2200	6	100	10	10	95	100
サンプルD2	10μm	70	0.3μm	30	10μm	1.5	3	10	18	2200	6	100	10	10	90	100
サンプルD3	10μm	70	0.3μm	30	10μm	2	3	10	18	2200	6	100	10	10	85	100
サンプルD4	10μm	70	0.3μm	30	10μm	2.5	3	10	18	2200	6	100	10	10	80	100
サンプルD5	10μm	70	0.3μm	30	10μm	3	3	10	18	2200	6	100	10	10	75	100
サンプルD6	10μm	70	0.3μm	30	10μm	3.5	3	10	18	2200	6	100	10	10	70	100
サンプルD7	10μm	70	0.3μm	30	10μm	4	3	10	18	2200	6	100	10	10	65	100
サンプルE1	10μm	70	0.3μm	30	10μm	1	3	10	18	2200	6	100	15	10	95	110
サンプルE2	10μm	70	0.3μm	30	10μm	1.5	3	10	18	2200	6	100	15	10	90	110
サンプルE3	10μm	70	0.3μm	30	10μm	2	3	10	18	2200	6	100	15	10	85	110
サンプルE4	10μm	70	0.3μm	30	10μm	2.5	3	10	18	2200	6	100	15	10	80	110
サンプルE5	10μm	70	0.3μm	30	10μm	3	3	10	18	2200	6	100	15	10	75	110
サンプルE6	10μm	70	0.3μm	30	10μm	3.5	3	10	18	2200	6	100	15	10	70	110
サンプルE7	10μm	70	0.3μm	30	10μm	4	3	10	18	2200	6	100	15	10	65	110

【0091】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明のセラミックハニカム構造体は、貫通孔における壁部の表面粗さ $R_z$ が $10\mu\text{m}$ 以上であり、前記セラミック部材の細孔径分布と壁厚の厚さを適切な条件にあわせたので、触媒反応が高いフィルタとしてもちいることができる。

【0092】

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明の排気ガス浄化用フィルタの一例を模式的に示した斜視図である。

【図2】

(a) は、図1に示したハニカムフィルタを構成する多孔質セラミック部材の一例を模式的に示した斜視図であり、(b) は、(a) に示した多孔質セラミック部材のA-A線断面図である。

【図3】

(a) は、本発明の排気ガス浄化用フィルタの別の一例を模式的に示した斜視図であり、(b) は、(a) に示したフィルタのB-B線断面図である。

【図4】

本発明の表面あらさを説明する図である。

【図5】

実施例及び比較例に係るフィルタにおける細孔分布と圧力損失との関係を示すグラフである。

【図6】

実施例及び比較例に係るフィルタにおける細孔分布と捕集効率との関係を示すグラフである。

【図7】

実施例及び比較例に係るフィルタにおける表面粗さと捕集効率との関係を示すグラフである。

【図8】

実施例及び比較例に係るフィルタにおける表面粗さと再生率との関係を示すグラフである。

【図 9】

実施例及び比較例に係るフィルタにおける表面粗さと捕集効率との関係を示すグラフである

【図 10】

実施例及び比較例に係るフィルタにおける表面粗さと再生率との関係を示すグラフである。

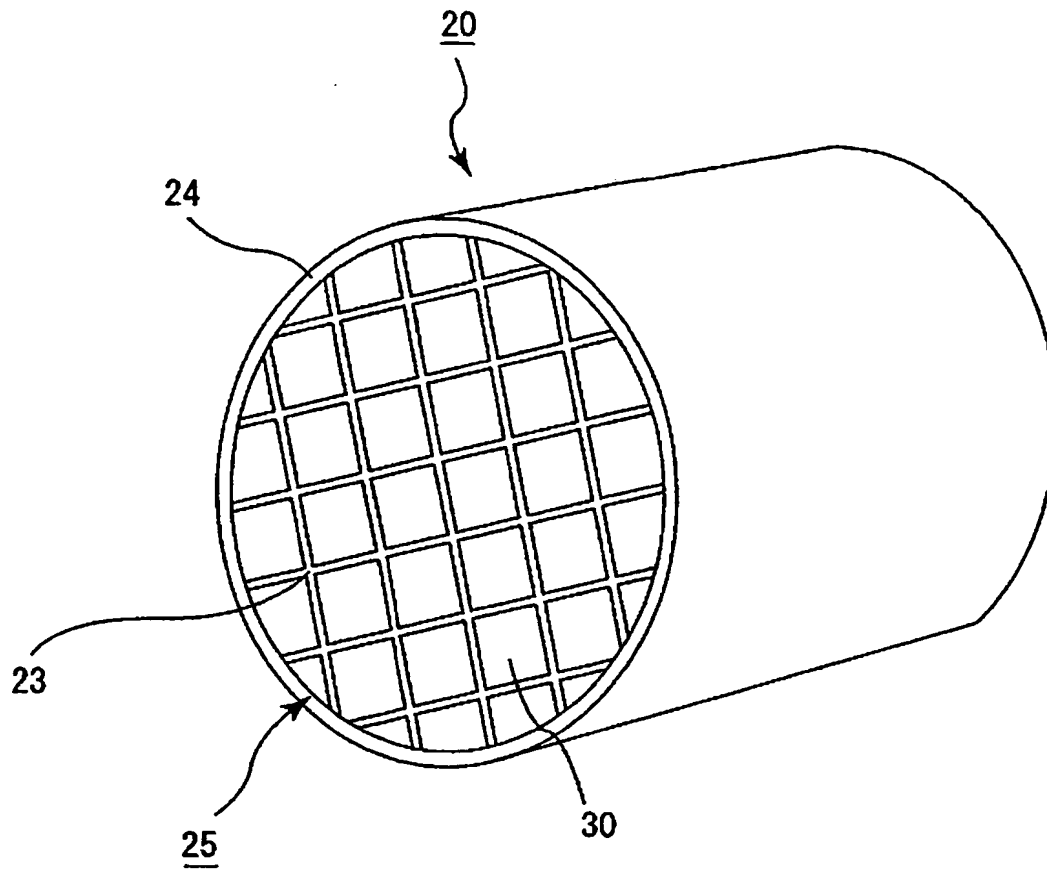
【符号の説明】

- 10、20 フィルタ（ハニカム構造体）
- 23 シール材層
- 24 シール材層
- 25 セラミックブロック
- 12、32 充填材

【書類名】

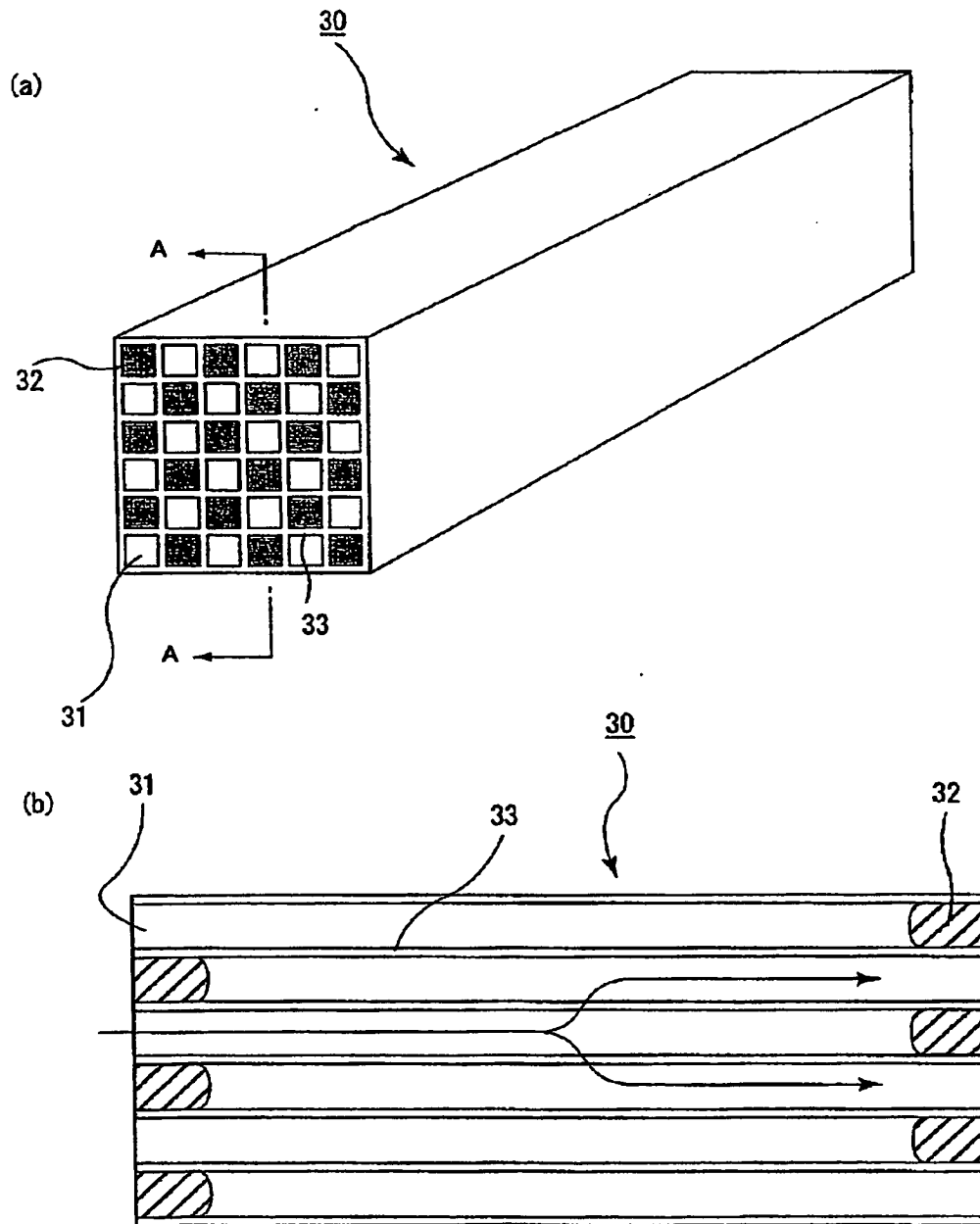
図面

【図 1】



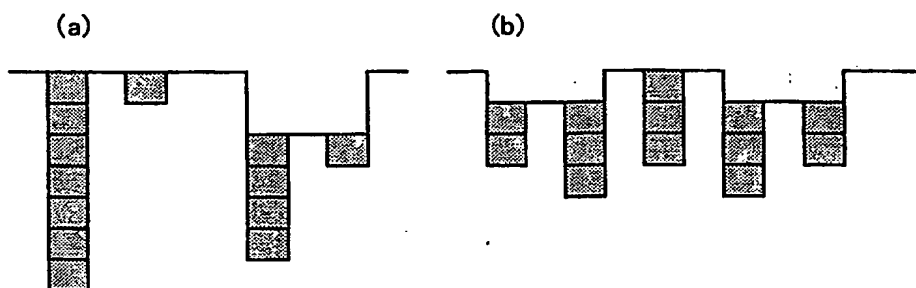


【図 2】

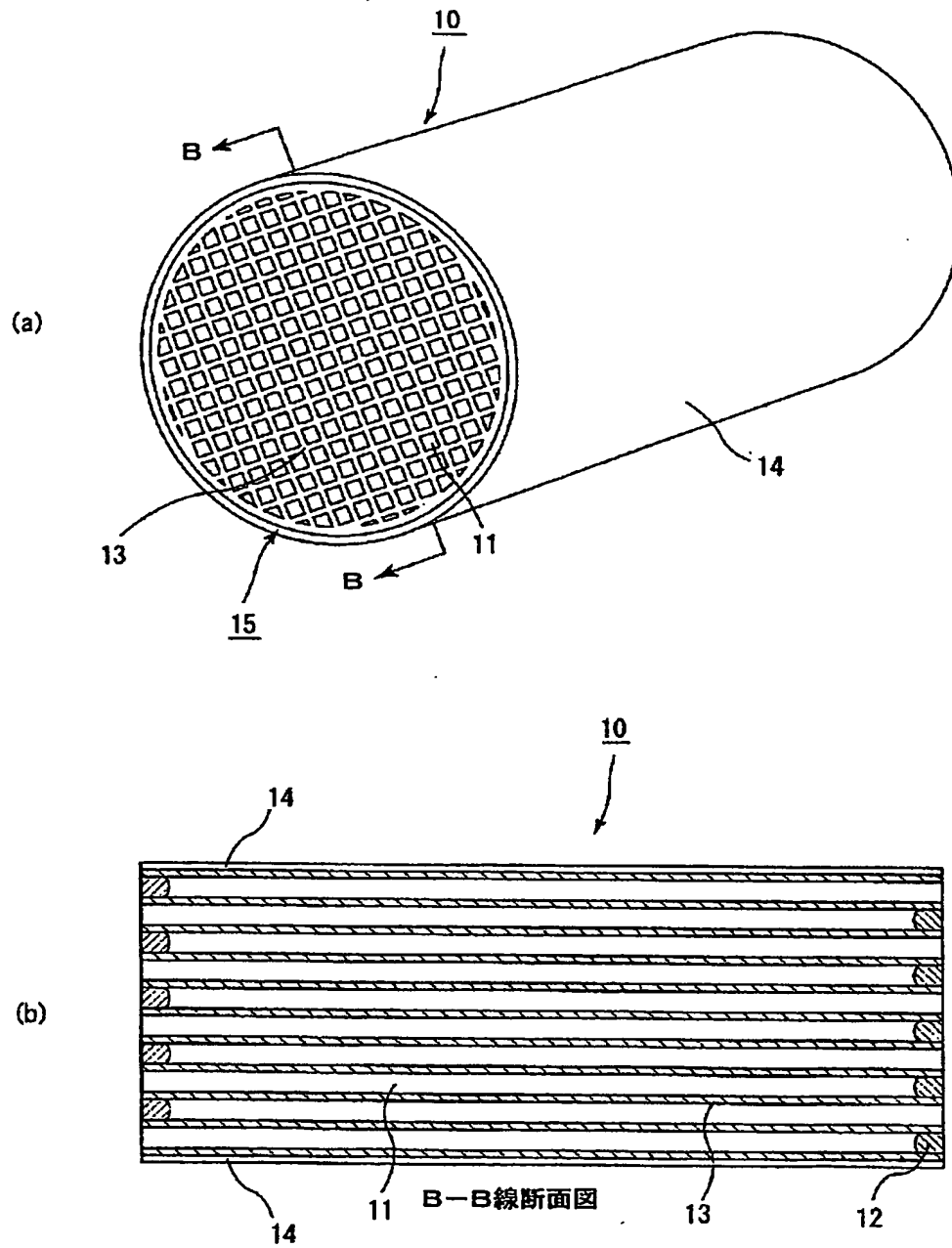


A-A線断面図

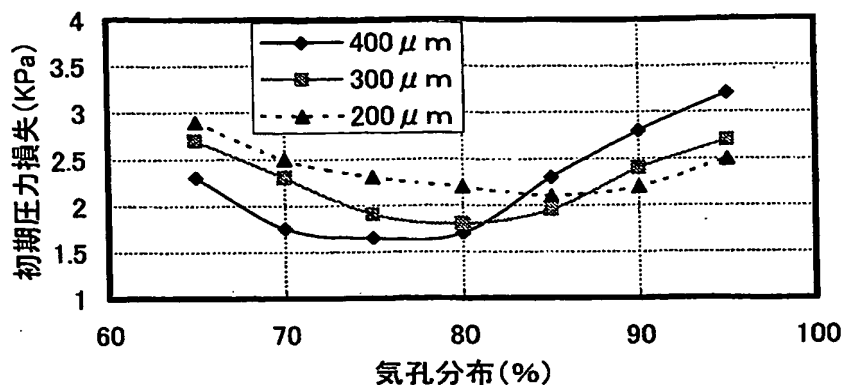
【図 3】



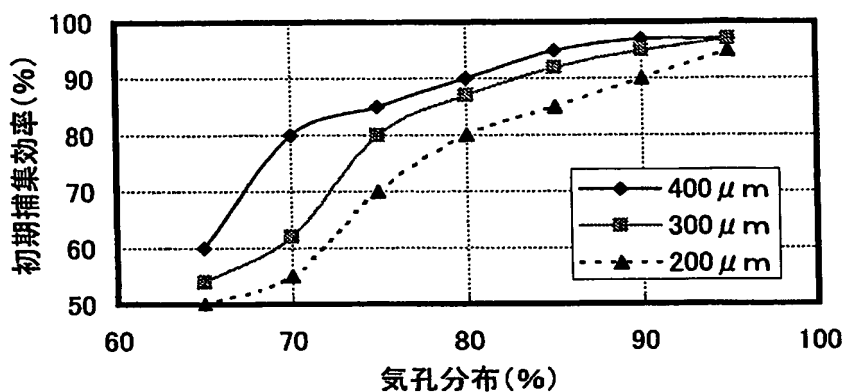
【図 4】



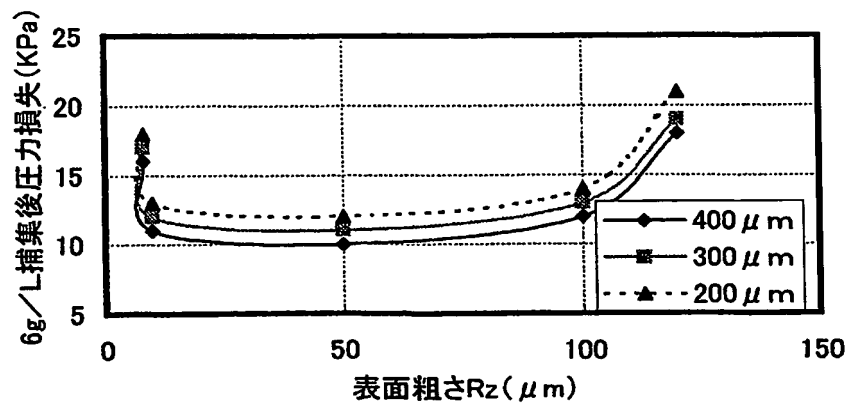
【図 5】



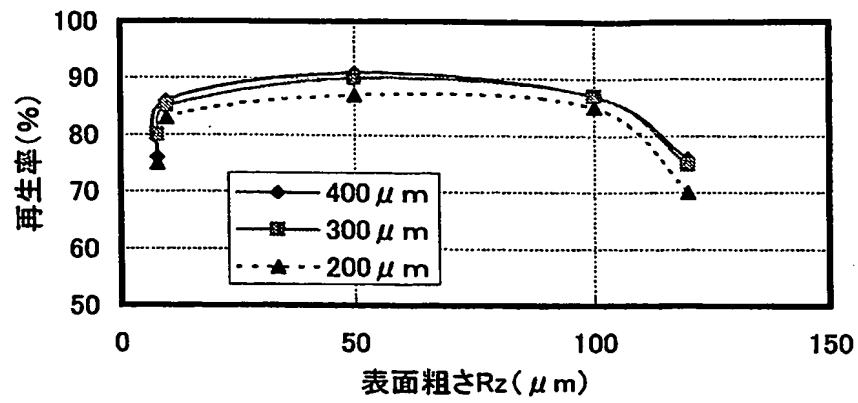
【図 6】



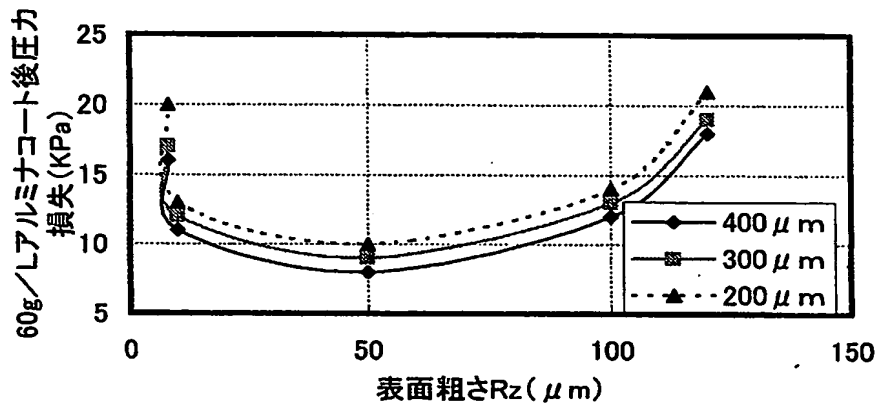
【図 7】



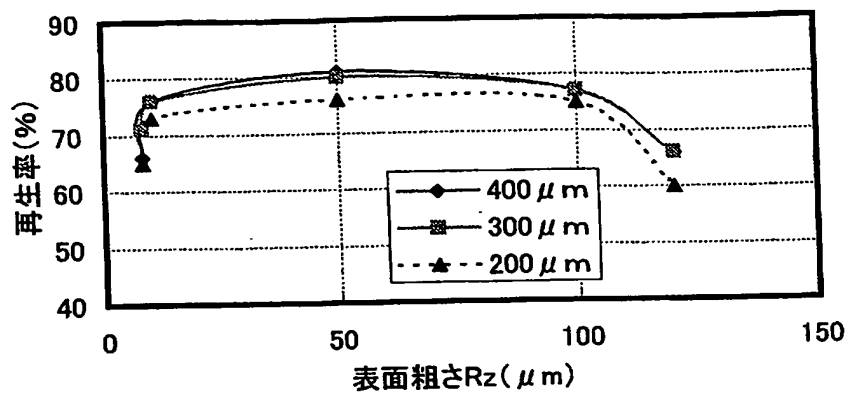
【図 8】



【図 9】



【図10】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】

圧損と捕集効率に優れると共に、触媒反応性の高い有効なセラミックハニカム構造体の構造を提案すること。

【解決手段】

壁部を隔てて多数の貫通孔が長手方向に並設され、これらの貫通孔のどちらか一方の端部が充填材によって封止されてなる、柱状の多孔質セラミック部材の1つまたは複数個の組み合わせからなるセラミックハニカム構造体についてこの構造体を形造っている、前記隔壁は、最大高さ粗さ $R_z$ が $10\mu\text{m}$ 以上の表面粗さを有し、かつ、水銀圧入法により細孔分布を測定したときの平均細孔径が $5\sim 100\mu\text{m}$ で、その平均細孔径の $0.9\sim 1.1$ 倍の細孔径をもつ細孔の全細孔容積に対する割合を $A(\%)$ とし、前記隔壁の厚さを $B(\mu\text{m})$ としたとき、これらが、次式の関係；

$$A \geq 90 - B/20, \text{ または } A \geq 100 - B/20$$

を満たすものであることを特徴とするセラミックハニカム構造体。

【選択図】 図1

特願 2 0 0 3 - 0 5 3 7 2 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 0 1 5 8 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 9 日

[変更理由]

新規登録

住 所

岐阜県大垣市神田町 2 丁目 1 番地

氏 名

イビデン株式会社